

SINGLE TUBE CYLINDRICAL REFORMER

Patent Number: JP2002187705
Publication date: 2002-07-05
Inventor(s): KOMIYA JUN; MIURA TOSHIYASU
Applicant(s): TOKYO GAS CO LTD
Requested Patent: ☐ JP2002187705
Application Number: JP20010312955 20011010
Priority Number(s):
IPC Classification: C01B3/38; C01B3/48; C10K3/04; H01M8/04; H01M8/06
EC Classification:
Equivalents:

Abstract

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a small sized high efficiency single tube cylindrical reformer for a solid polymer type fuel cell of which the start is quick.

SOLUTION: All functions of a boiler, reforming, CO transforming and CO selective oxidation are integrated without separately mounting a heating or a cooling structure by performing the heat exchange properly inside of the reformer, and the energy for cooling or heating given from the outside is saved to improve the efficiency by using the heat generated by the exothermic reaction for the generation of steam. The heat transfer performance and the starting-up performance are improved by forming a preheating layer, in which metallic filler is filled, in an upper part preceding stage of a reforming catalyst layer and providing a spiral blade for heat transfer on the preheating layer and the reforming catalytic layer. The whole reformer is miniaturized by integrating a mixing chamber of air for PROX (CO selective oxidation) and the reformed gas with a PROX catalyst layer. The temperature of the PROX catalyst layer is controllable to a temperature proper to the selective oxidation reaction by providing a cooling structure by combustion air or the like on the outer peripheral part of the PROX catalyst layer and the concentration of CO is efficiently and surely reduced.

Data supplied from the esp@cenet database - I2

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-187705

(P2002-187705A)

(43) 公開日 平成14年7月5日 (2002.7.5)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード (参考)
C 0 1 B 3/38		C 0 1 B 3/38	4 G 0 4 0
	3/48	3/48	4 H 0 6 0
C 1 0 K 3/04		C 1 0 K 3/04	5 H 0 2 6
H 0 1 M 8/04		H 0 1 M 8/04	G 5 H 0 2 7
			J

審査請求 未請求 請求項の数23 O L (全 12 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2001-312955 (P2001-312955)

(22) 出願日 平成13年10月10日 (2001. 10. 10)

(31) 優先権主張番号 特願2000-308675 (P2000-308675)

(32) 優先日 平成12年10月10日 (2000. 10. 10)

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000220262

東京瓦斯株式会社

東京都港区海岸1丁目5番20号

(72) 発明者 小宮 純

東京都港区海岸一丁目5番20号 東京瓦斯株式会社内

(72) 発明者 三浦 俊泰

東京都港区海岸一丁目5番20号 東京瓦斯株式会社内

(74) 代理人 100077827

弁理士 鈴木 弘男

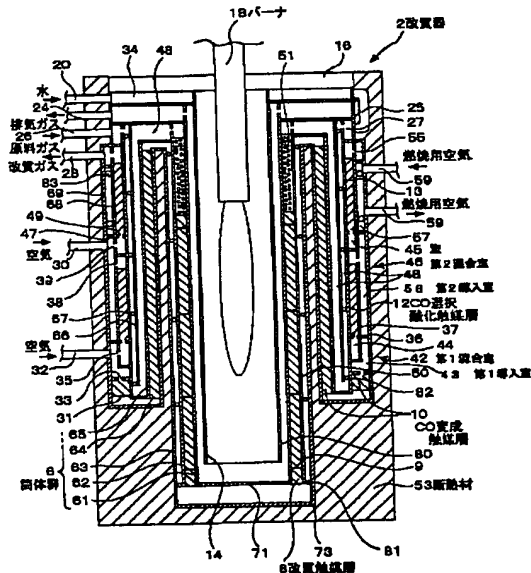
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 単管円筒式改質器

(57) 【要約】

【課題】 小型で、効率が高く、起動の早い固体高分子型燃料電池用の単管円筒式改質器を提供する。

【解決手段】 改質器の内部で適宜熱交換を行なわせる構成としたことから、個別に加熱や冷却機構を設置することなくボイラ、改質、CO変成、CO選択酸化の全ての機能を一体化でき、しかも、発熱反応で発生した熱を蒸気の発生に利用することとしたので、他から付与する冷却や昇温のためのエネルギーを省略でき、効率を向上させることができる。改質触媒層の上部前段に金属充填物を充填した予熱層を形成し、また、予熱層と改質触媒層に伝熱用の羽根を螺旋状に設けたことにより、伝熱性能と起動性を向上できる。PROX用空気と改質ガスとの混合室をPROX触媒層と一体化したため、改質器全体を小さくすることができた。また、PROX触媒層の外周部に燃焼空気等による冷却機構を備えたため、PROX触媒層の温度をCO選択酸化反応に適切な温度に制御可能となり、無駄なく、かつ確実にCO濃度を低減させることができる。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 同心状に配置した複数の直立した円形筒体と、該円形筒体の内部にこれと中心軸を同軸にして配置された輻射筒と、該輻射筒の中心部分上部に配置されたバーナとを備え、前記円形筒体によって区画された間隙で、下方に向けて流路が形成された間隙に改質触媒を充填した単管円筒式改質器において、前記改質触媒を充填した改質触媒層の上部前段に、金属製充填物を充填した予熱層を設けたことを特徴とした単管円筒式改質器。

【請求項2】 同心状に配置した複数の直立した円形筒体と、該円形筒体の内部にこれと中心軸を同軸にして配置された輻射筒と、該輻射筒の中心部分上部に配置されたバーナとを備え、前記円形筒体によって区画された間隙で、下方に向けて流路が形成された間隙に改質触媒を充填した単管円筒式改質器において、前記改質触媒を充填した改質触媒層の空間に羽根を螺旋状に設け、原料ガスが該改質触媒層を螺旋状に流通するように構成したことを特徴とした単管円筒式改質器。

【請求項3】 前記予熱層および前記改質触媒層に羽根を螺旋状に連続して設け、原料ガスが前記予熱層と前記改質触媒層を螺旋状に流通するように構成したことを特徴とした請求項1記載の単管円筒式改質器。

【請求項4】 前記螺旋状の羽根を長手方向に複数分割して設けたことを特徴とした請求項2または3記載の単管円筒式改質器。

【請求項5】 同心状に配置した複数の直立した円形筒体と、該円形筒体の内部にこれと中心軸を同軸にして配置された輻射筒と、該輻射筒の中心部分上部に配置されたバーナとを備え、前記円形筒体によって区画された間隙で、下方に向けて流路が形成された間隙に改質触媒を充填した単管円筒式改質器において、前記改質触媒を充填した改質触媒層の外周に、該改質触媒層と下端で接続し、上方に向けて流路が形成された通路を設け、該通路の出口を前記予熱層の入口付近の外周に配置し、かつ該通路の空間に羽根を螺旋状に設け、原料ガスが該通路を螺旋状に流通するように構成したことを特徴とした単管円筒式改質器。

【請求項6】 前記螺旋状の羽根に代えて、丸棒を用いたことを特徴とする請求項2～5のいずれか1項に記載の単管円筒式改質器。

【請求項7】 同心状に配置した複数の直立した円形筒体と、該円形筒体の内部にこれと中心軸を同軸にして配置された輻射筒と、該輻射筒の中心部分上部に配置されたバーナとを備え、前記円形筒体によって区画された間隙で、下方に向けて流路が形成された間隙に改質触媒を充填した単管円筒式改質器において、前記改質触媒を充填した改質触媒層の外周に設けられ、該改質触媒層と下端で接続し、上方に向けて流路が形成された通路と、該通路の外周に設けられ、該通路の終端から反転して下

方に向けて流路が形成されたC O変成触媒層と、前記C O変成触媒層の外周に設けられ、該C O変成触媒層と下部で接続し、上方に向けて流路が形成されたC O選択酸化触媒層と、

前記C O変成触媒層と前記C O選択酸化触媒層との間に設けられ、上部に水と原料ガスとの導入口を有し、前記C O選択酸化触媒層側においては下方に向いた流路であり、該下向きの流路の下端において反転し、前記C O変成触媒層側を上方に向けて流れる流路とし、該上向きの流路が前記改質触媒層に接続している加熱路と、を設けたことを特徴とした単管円筒式改質器。

【請求項8】 混合室が、前記C O変成触媒層から前記C O選択酸化触媒層へ通ずる折り返し部で、かつ前記加熱路の下部に設けられ、

更に前記混合室は、所定の数の通過孔が形成された仕切板を内部に備え、導入された空気と前記C O変成触媒層からの改質ガスを前記仕切板の通過孔に通すことにより混合することを特徴とした請求項7に記載の単管円筒式改質器。

【請求項9】 前記C O選択酸化触媒層を、第1 C O選択酸化触媒層と該第1 C O選択酸化触媒層に連続した第2 C O選択酸化触媒層とし、かつ第2混合室が、前記第1 C O選択酸化触媒層と前記第2 C O選択酸化触媒層との間に設けられ、

更に前記第2混合室は、所定の数の通過孔が形成された第2仕切板を内部に備え、導入された空気と前記第1 C O選択酸化触媒層からの改質ガスを前記第2仕切板の通過孔に通すことにより混合し、かつ前記第2 C O選択酸化触媒層の外周部に冷却流体を流通させる冷却路を形成したことを特徴とした請求項7または8に記載の単管円筒式改質器。

【請求項10】 前記仕切板の通過孔、もしくは第2仕切板の通過孔は、該通過孔が形成された仕切板の前後に設けられた仕切板に形成された通過孔の開口位置と前記改質ガスの流通方向に対して直線状に位置しないように配置したことを特徴とした請求項9に記載の単管円筒式改質器。

【請求項11】 同心状に配置した複数の直立した円形筒体と、該円形筒体の内部にこれと中心軸を同軸にして配置された輻射筒と、該輻射筒の中心部分上部に配置されたバーナとを備え、前記円形筒体によって区画された間隙で、下方に向けて流路が形成された間隙に改質触媒を充填した単管円筒式改質器において、前記改質触媒を充填した改質触媒層の外周に設けられ、該改質触媒層と下端で接続し、上方に向けて流路が形成された通路と、該通路の外周に設けられ、該通路の終端から反転して下方に向けて流路が形成されたC O変成触媒層と、前記C O変成触媒層の外周に設けられ、該C O変成触媒層と下部で接続し、上方に向けて流路が形成されたC O

選択酸化触媒層と、

前記ＣＯ変成触媒層と前記ＣＯ選択酸化触媒層との間に設けられ、上部に導入口を有し、前記ＣＯ選択酸化触媒層側においては下方に向けた流路で、該下向きの流路の下端において反転し、前記ＣＯ変成触媒層側を上方に向けた流路とした加熱路と、を設け、

前記ＣＯ変成触媒層と前記ＣＯ選択酸化触媒層からなる流路の軸方向長さを、対向する前記通路に対して短縮させ、かつ前記ＣＯ選択酸化触媒層の上流側の一部を第２ＣＯ変成触媒層とし、

更に混合室を、前記第２ＣＯ変成触媒層の終端部に沿って環状に前記ＣＯ選択酸化触媒層と前記第２ＣＯ変成触媒層の間に設け、かつ前記混合室は、所定の数の通過孔が形成された仕切板を内部に備え、導入された空気と前記第１ＣＯ選択酸化触媒層からの改質ガスを前記仕切板の通過孔に通すことにより混合することを特徴とした単管円筒式改質器。

【請求項１２】 前記第２ＣＯ変成触媒層の外周壁の内側に前記ＣＯ選択酸化触媒層の外周壁を形成し、前記第２ＣＯ変成触媒層の外周壁と前記ＣＯ選択酸化触媒層の外周壁との間で、かつ前記混合室から区画された空間を、冷却流体を流通させる冷却路としたことを特徴とする請求項１１に記載の単管円筒式改質器。

【請求項１３】 前記冷却路に、該冷却路を螺旋状に区画する仕切部材を設けたことを特徴とする請求項９、１０または１２のいずれか１項に記載の単管円筒式改質器。

【請求項１４】 前記冷却路内を流れる冷却流体を、前記ＣＯ選択酸化触媒層内を流れる流体の流通方向と対向させて流すことを特徴とする請求項９、１０または１２のいずれか１項に記載の単管円筒式改質器。

【請求項１５】 前記冷却流体に、燃料電池の燃料極から排出されるオフガスをを用いたことを特徴とする請求項９、１０または１２のいずれか１項に記載の単管円筒式改質器。

【請求項１６】 前記冷却流体に、前記バーナーで燃焼に利用する燃焼用空気をを用いたことを特徴とする請求項９、１０または１２のいずれか１項に記載の単管円筒式改質器。

【請求項１７】 前記改質触媒を充填した改質触媒層の上部前段に、金属製充填物を充填した予熱層を設けたことを特徴とする請求項７～１６のいずれか１項に記載の単管円筒式改質器。

【請求項１８】 前記改質触媒を充填した改質触媒層の空間に羽根を螺旋状に設け、原料ガスが該改質触媒層を螺旋状に流通するように構成したことを特徴とする請求項７～１７のいずれか１項に記載の単管円筒式改質器。

【請求項１９】 前記通路内部に流路を螺旋状に形成する仕切部材を設けたことを特徴とする請求項７～１８のいずれか１項に記載の単管円筒式改質器。

【請求項２０】 前記ＣＯ変成触媒層内に羽根を、該ＣＯ変成触媒層の流路を形成する前記円筒筒体の内側の前記円筒筒体に固定して設けたことを特徴とする請求項７～１９のいずれか１項に記載の単管円筒式改質器。

【請求項２１】 前記ＣＯ変成触媒層と前記ＣＯ選択酸化触媒層との間に設けられ、上部に導入口を有し、前記ＣＯ選択酸化触媒層側を下方に向けた流路とした加熱路内に仕切り部材を螺旋状に設け、該加熱路の流路を螺旋状に区画形成し、少なくとも前記仕切り部材により形成された流路が一回転以上することを特徴とする請求項７～２０のいずれか１項に記載の単管円筒式改質器。

【請求項２２】 前記加熱路の前記下向きの流路は内部に螺旋状の仕切部材を備え、かつ前記下向きの流路と前記上向きの流路とが、前記仕切部材の終端付近に開口した所定の数の連通孔で連通していることを特徴とした請求項７～２１のいずれか１項に記載の単管円筒式改質器。

【請求項２３】 前記単管円筒式改質器の上下を反転させたことを特徴とする請求項１～２２のいずれか１項に記載の単管円筒式改質器。

【発明の詳細な説明】

【０００１】

【発明の属する技術分野】本発明は、都市ガスやＬＰＧ等の炭化水素系燃料を水蒸気改質して水素リッチな改質ガスを製造する単管円筒式改質器に関し、特に固体高分子型燃料電池に用いる改質器に関する。

【０００２】

【従来技術】改質器は、都市ガスやＬＰＧ等の原料ガスを水蒸気改質して水素濃度の高い改質ガスを生成する装置であり、光ファイバーや半導体の製造過程や燃料電池等で使用する水素を製造するために、広く使用されている。

【０００３】改質器による水蒸気改質反応は吸熱反応であるため、反応を持続させるため加熱が必要で、通常バーナー等の燃焼装置を改質器に付設し、燃料電池からの余剰水素や改質原料ガスをバーナーで燃焼させて加熱している。比較的小容量の水素を製造する改質器としては、例えば特開平１１－１１９０１に開示されているような単管円筒式改質器が知られている。この単管円筒式改質器は、２つの円筒間に触媒層を内蔵させた円筒容器の中心にバーナー等の加熱手段を設け、触媒層を加熱手段で加熱し触媒層に通した原料ガスを水蒸気により改質するように構成している。

【０００４】また、本出願人は、特願平１１－２４１０６８にて単管円筒式改質器、それを用いた燃料電池、及びその運転方法について出願している。

【０００５】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、固体高分子型燃料電池を家庭や自動車等に用いる場合には、単管円筒式改質器を含む改質装置全体の小型軽量化が必須

条件であり、また効率のより高い運転と運転開始の立ち上り時間を短縮させる等の各種の改良が必要とされている。

【0006】例えば、原料ガスの効率的な予熱による燃料の削減、蒸気発生器の過熱防止による使い勝手の向上、改質器内部の必要な温度の保持と熱量の有効利用による高効率化、有効な断熱構造による外部への放熱の抑制、内部温度差によって生じる熱応力を緩和して高い耐久性の実現、反応熱を有効利用して蒸気発生効率化、運転状態の変動に効率的に対応可能な運転方法等が求められている。

【0007】また、従来の単管円筒式改質器で生成された改質ガスには10%程度のCOが含まれており、固体高分子型燃料電池の燃料に用いる場合、CO変成器を設けてCO濃度を0.5%程度まで減少させた上で、さらにCO選択酸化器を設けてCO選択酸化反応を行なわせ、CO濃度を10ppm程度にまで低減させる必要がある。ところが、そのためにCO変成器および、CO選択酸化器を単管円筒式改質器と個別に設けると、小型化、高効率、起動性の面から好ましくない。

【0008】また特願平11-241068号の出願における単管円筒式改質器では、外部への熱の無駄な放出や各部での熱の出入りが適切に行なわれていないという問題があった。

【0009】本発明は上述の点にかんがみてなされたもので、COの含有濃度が低く、効率的で、良好な起動性を有し、かつ小型軽量化を実現し、更に熱的に安定した無駄のない単管円筒式改質器を提供することを目的とする。

【0010】

【課題を解決するための手段】本発明は、上記課題を解決するため、単管円筒式改質器を次のように構成した。

【0011】1、同心状に配置した複数の直立した円形筒体と、該円形筒体の内部にこれと中心軸を同軸にして配置された輻射筒と、該輻射筒の中心部分上部に配置されたバーナとを備え、前記円形筒体によって区画された間隙で、下方に向けて流路が形成された間隙に改質触媒を充填した単管円筒式改質器において、前記改質触媒を充填した改質触媒層の上部前段に、金属製充填物を充填した予熱層を設けて単管円筒式改質器を構成した。

【0012】2、同心状に配置した複数の直立した円形筒体と、該円形筒体の内部にこれと中心軸を同軸にして配置された輻射筒と、該輻射筒の中心部分上部に配置されたバーナとを備え、前記円形筒体によって区画された間隙で、下方に向けて流路が形成された間隙に改質触媒を充填した単管円筒式改質器において、前記改質触媒を充填した改質触媒層の空間に羽根を螺旋状に設け、原料ガスが該改質触媒層を螺旋状に流通するようにして単管円筒式改質器を構成した。

【0013】3、前記予熱層および前記改質触媒層に羽

根を螺旋状に連続して設け、原料ガスが前記予熱層と前記改質触媒層を螺旋状に流通するようにして1に記載の単管円筒式改質器を構成した。

【0014】4、前記螺旋状の羽根を長手方向に複数分割して設けて2または3に記載の単管円筒式改質器を構成した。

【0015】5、同心状に配置した複数の直立した円形筒体と、該円形筒体の内部にこれと中心軸を同軸にして配置された輻射筒と、該輻射筒の中心部分上部に配置されたバーナとを備え、前記円形筒体によって区画された間隙で、下方に向けて流路が形成された間隙に改質触媒を充填した単管円筒式改質器において、前記改質触媒を充填した改質触媒層の外周に、該改質触媒層と下端で接続し、上方に向けて流路が形成された通路を設け、該通路の出口を前記予熱層の入口付近の外周に配置し、かつ該通路の空間に羽根を螺旋状に設け、原料ガスが該通路を螺旋状に流通するようにして単管円筒式改質器を構成した。

【0016】6、前記螺旋状の羽根に代えて、丸棒を用いて2～5のいずれか1項に記載の単管円筒式改質器を構成した。

【0017】7、同心状に配置した複数の直立した円形筒体と、該円形筒体の内部にこれと中心軸を同軸にして配置された輻射筒と、該輻射筒の中心部分上部に配置されたバーナとを備え、前記円形筒体によって区画された間隙で、下方に向けて流路が形成された間隙に改質触媒を充填した単管円筒式改質器において、前記改質触媒を充填した改質触媒層の外周に設けられ、該改質触媒層と下端で接続し、上方に向けて流路が形成された通路と、該通路の外周に設けられ、該通路の終端から反転して下方に向けて流路が形成されたCO変成触媒層と、前記CO変成触媒層の外周に設けられ、該CO変成触媒層と下部で接続し、上方に向けて流路が形成されたCO選択酸化触媒層と、前記CO変成触媒層と前記CO選択酸化触媒層との間に設けられ、上部に導入口を有し、前記CO選択酸化触媒層側においては下方に向けた流路で、該下向きの流路の下端において反転し、前記CO変成触媒層側を上方に向けた流路とした加熱路とを設けて単管円筒式改質器を構成した。

【0018】8、混合室が、前記CO変成触媒層から前記CO選択酸化触媒層へ通ずる折り返し部で、かつ前記加熱路の下部に設けられ、更に前記混合室は、所定の数の通過孔が形成された仕切板を内部に備え、導入された空気と前記CO変成触媒層からの改質ガスを前記仕切板の通過孔に通ずることにより混合することを特徴として7に記載の単管円筒式改質器を構成した。

【0019】9、前記CO選択酸化触媒層を、第1CO選択酸化触媒層と該第1CO選択酸化触媒層に連続した第2CO選択酸化触媒層とし、かつ第2混合室が、前記第1CO選択酸化触媒層と前記第2CO選択酸化触媒層

との間に設けられ、更に前記第2混合室は、所定の数の通過孔が形成された第2仕切板を内部に備え、導入された空気と前記第1CO選択酸化触媒層からの改質ガスとを前記第2仕切板の通過孔に通すことにより混合し、かつ前記第2CO選択酸化触媒層の外周部に冷却流体を流通させる冷却路を形成したこととして7または8に記載の単管円筒式改質器を構成した。

【0020】10、前記仕切板の通過孔、もしくは第2仕切板の通過孔は、該通過孔が形成された仕切板の前後に設けられた仕切板に形成された通過孔の開口位置と前記改質ガスの流通方向に対して直線状に位置しないように配置して9に記載の単管円筒式改質器を構成した。

【0021】11、同心状に配置した複数の直立した円形筒体と、該円形筒体の内部にこれと中心軸を同軸にして配置された輻射筒と、該輻射筒の中心部分上部に配置されたバーナとを備え、前記円形筒体によって区画された間隙で、下方に向けて流路が形成された間隙に改質触媒を充填した単管円筒式改質器において、前記改質触媒を充填した改質触媒層の外周に設けられ、該改質触媒層と下端で接続し、上方に向けて流路が形成された通路と、該通路の外周に設けられ、該通路の終端から反転して下方に向けて流路が形成されたCO変成触媒層と、前記CO変成触媒層の外周に設けられ、該CO変成触媒層と下部で接続し、上方に向けて流路が形成されたCO選択酸化触媒層と、前記CO変成触媒層と前記CO選択酸化触媒層との間に設けられ、上部に導入口を有し、前記CO選択酸化触媒層側においては下方に向けた流路で、該下向きの流路の下端において反転し、前記CO変成触媒層側を上方に向けた流路とした加熱路と、を設け、前記CO変成触媒層と前記CO選択酸化触媒層からなる流路の軸方向長さを、対向する前記通路に対して短縮させ、かつ前記CO選択酸化触媒層の上流側の一部を第2CO変成触媒層とし、更に混合室を、前記第2CO変成触媒層の終端部に沿って環状に前記CO選択酸化触媒層と前記第2CO変成触媒層の間に設け、かつ前記混合室は、所定の数の通過孔が形成された仕切板を内部に備え、導入された空気と前記第1CO選択酸化触媒層からの改質ガスとを前記仕切板の通過孔に通すことにより混合することとして単管円筒式改質器を構成した。

【0022】12、前記第2CO変成触媒層の外周壁の内側に前記CO選択酸化触媒層の外周壁を形成し、前記第2CO変成触媒層の外周壁と前記CO選択酸化触媒層の外周壁との間で、かつ前記混合室から区画された空間を、冷却流体を流通させる冷却路として11に記載の単管円筒式改質器を構成した。

【0023】13、前記冷却路に、該冷却路を螺旋状に区画する仕切部材を設けて9、10または12のいずれかに記載の単管円筒式改質器を構成した。

【0024】14、前記冷却路内を流れる冷却流体を、前記CO選択酸化触媒層内を流れる流体の流通方向と対

向させて流すこととして9、10または12のいずれかに記載の単管円筒式改質器を構成した。

【0025】15、前記冷却流体に、燃料電池の燃料極から排出されるオフガスを用いて9、10または12のいずれかに記載の単管円筒式改質器を構成した。

【0026】16、前記冷却流体に、前記バーナーで燃焼に利用する燃焼用空気をを用いることとして9、10または12のいずれかに記載の単管円筒式改質器を構成した。

【0027】17、前記改質触媒を充填した改質触媒層の上部前段に、金属製充填物を充填した予熱層を設けて7～16のいずれかに記載の単管円筒式改質器を構成した。

【0028】18、前記改質触媒を充填した改質触媒層の空間に羽根を螺旋状に設け、原料ガスが該改質触媒層を螺旋状に流通させて7～17のいずれかに記載の単管円筒式改質器を構成した。

【0029】19、前記通路内部に流路を螺旋状に形成する仕切部材を設けて7～18のいずれかに記載の単管円筒式改質器を構成した。

【0030】20、前記CO変成触媒層内に羽根を、該CO変成触媒層の流路を形成する前記円形筒体の内側の前記円形筒体に固定して設けて7～19のいずれかに記載の単管円筒式改質器を構成した。

【0031】21、前記CO変成触媒層と前記CO選択酸化触媒層との間に設けられ、上部に導入口を有し、前記CO選択酸化触媒層側を下方に向けた流路とした加熱路内に仕切り部材を螺旋状に設け、該加熱路の流路を螺旋状に区画形成し、少なくとも前記仕切り部材により形成された流路が一回転以上することとして7～20のいずれかに記載の単管円筒式改質器を構成した。

【0032】22、前記加熱路の前記下向きの流路は内部に螺旋状の仕切部材を備え、かつ前記下向きの流路と前記上向きの流路とが、前記仕切部材の終端付近に開口した所定の数の連通孔で連通していることとして7～21のいずれかに記載の単管円筒式改質器を構成した。

【0033】23、前記単管円筒式改質器の上下を反転させて1～22のいずれかに記載の単管円筒式改質器を構成した。

【0034】

【発明の実施の形態】本発明にかかる単管円筒式改質器の実施の一形態を図を用いて説明する。

【0035】図1に、単管円筒式改質器の概略構成を示す。

【0036】改質器2は、中心軸を同一にして設けられた第1筒体61から第9筒体69までの複数の筒体と、各筒体間で形成された空隙と、第1筒体61の中心に設けられたバーナ18と、各筒体によって形成された空間内に設けられた改質触媒層8、CO変成触媒層10（以下シフト層10ともいう。）、CO選択酸化触媒層12

(以下PROX層12ともいう。)等から構成されている。

【0037】改質器2の側面には、水の供給口20、燃焼排ガスの取出口24、原料ガスの供給口26、改質ガスの取出口28、PROX用空気の供給口30、32が設けてある。

【0038】第1筒体61の内側には中心軸を同じくして円筒状の伝熱隔壁14(輻射筒)が底板71との間に適度な間隔を設けて配置しており、その空隙が排気通路80となっている。

【0039】排気通路80は、上部で燃焼排ガスの取出口24に接続し、バーナ18での燃焼排ガスを流通、排気させる。バーナ18は、伝熱隔壁14の内側にバーナ取付台16を介して取り付けられており、排気通路80とバーナ取付台16の間には、水の供給口20に連通した水加熱路34が形成されている。

【0040】水加熱路34は、供給口20に対向した位置に設けられた連結管25により原料ガスの供給路27に接続し、供給路27には、原料ガスの供給口26が接続している。

【0041】次に、各筒体間について説明する。

【0042】第1筒体61と第2筒体62の間は、上部が予熱層51であり、その予熱層51の下部が改質触媒層8となっており、更に第1筒体61と第2筒体62の間には、第1筒体61から第2筒体62に延びる伝熱用の羽根9が4枚図3に示すように螺旋状にほぼ一周するように設けられ、第1筒体61と第2筒体62の間の流路を螺旋状に形成している。図2に横断面を示す。このように羽根9を4枚用いれば、4つの流路が形成される。尚、羽根9の螺旋は一周でなくともよく、また枚数も4枚に限らず、1〜20枚程度であればよい。

【0043】予熱層51は上部で、原料ガスの供給路27に接続している加熱路48に連結し、加熱路48を介して原料ガスと水(蒸気等)が流入される。予熱層51の内部には、伝熱性の高い所定の形状の金属製充填物が充填してある。金属製充填物は、熱の伝導を良好にし、ガス等が予熱層51の内部を通過すると通過するガス等を加熱するとともに、大きな温度分布を生じさせず突沸を防止する。また羽根9が設けられていることから、排気通路80の熱を予熱層51の内部に効率よく伝達させることができ、更に予熱層51の内部に旋回流路を生じさせることから、より効率よくガスを加熱する。

【0044】改質触媒層8には、原料ガスを水蒸気改質する改質触媒が充填してあり、下部で第1筒体61の底板71と、第3筒体63の底板73との間に形成された空間を介して通路50の下端に連通している。これら底板71と底板73との間の間隙は、バーナ18の火炎の断熱層としての機能も有している。更に改質触媒層8には、上述したように羽根9が設けられており、排気通路80の熱が改質触媒層8の内部に伝達されるとともに、

羽根9により螺旋状に形成された流路によって温度差が少なく効率よく改質反応を起こすようになっている。

【0045】第2筒体62と第3筒体63の間は、所定の幅の通路50となっており、通路50は4本の丸棒81で螺旋状に区画されている。これにより、改質触媒層8を出たガスは、通路50を通る際、保有する熱を第2筒体62を介して改質触媒層8に伝達して加熱するとともに、通過ガスおよび改質触媒層8の周方向の温度差を均等にさせることができる。

【0046】第3筒体63と第4筒体64との間は隙間が形成してあり、そこに断熱材53が充填され熱の伝達を遮断する。

【0047】第4筒体64と第5筒体65の間には、CO変成触媒が充填されたシフト層(CO変成触媒層)10が形成してあり、シフト層10で、COの変成反応を行なう。また、シフト層10には、図2に示すように羽根11が16本軸方向に平行に取り付けられている。羽根11は、第4筒体64に固定され、他端を第5筒体65に向けて設けてあり、シフト層10の内部温度が等しくなるようになっている。尚、羽根11を螺旋状に形成し、流路を螺旋状にしてもよく、また数は16に限るものではない。

【0048】シフト層10の上部は通路50に接続し、下部は第7筒体67と第8筒体68との間に形成された第1PROX層(CO選択酸化触媒層)12に接続している。

【0049】第1PROX層12には、CO選択酸化触媒が充填してあり、COの含有量をppm単位にまで低減させる酸化反応を行なう。第4筒体64は、下部で第9筒体69の底部に接続している。第5筒体65と第7筒体67の間は、第6筒体66を間に有する加熱路48に形成してあり、原料ガス供給口26から供給される原料ガスと水の供給口20から供給される水とを通過させてこれらを加熱し、予熱層51に送出する。また加熱路48の外側の通路には、空間内に4本の丸棒82が螺旋状に設けてあり、通路が螺旋状にほぼ一周するよう区画形成されている。

【0050】第7筒体67と第9筒体69の間には、第1PROX層12と、第2PROX層13と、第1混合室42および第2混合室46等とが形成してあり、更に下部には仕切板31を境にしてシフト層10が設けてある。第1混合室42は、空気供給口32が接続された第1導入室43と室44からなり、第1導入室43と室44の間の第8筒体68の側面には孔35が1ヶ所形成してある。第7筒体67と第9筒体69の間の仕切板31には、周方向に8ヶ所の孔33が形成してあり、第1導入室43に連通している。第1導入室43には、空気供給口32からの空気が導入され、シフト層10からのガスに混入される。室44は、周方向に形成されており、仕切板36に8ヶ所設けられた孔37により第1PRO

X層12に連通している。

【0051】第2混合室46は、第1混合室42と同様、空気供給口30が接続された第2導入室58と室45からなり、第2導入室58と室45の間の第8筒体68の側面には孔39が1ヶ所形成してある。

【0052】第1PROX層12は、第8筒体68の側面に8ヶ所設けられた孔38により第2導入室58に連通している。第2導入室58は、空気供給口30に接続し、更に、第8筒体68の側面に1ヶ所設けられた孔39により、第7筒体67と第8筒体68の間に形成された室45に連通している。室45は、周状に形成されており、仕切板47に8ヶ所設けられた孔49により第2PROX層13に連通している。第2PROX層13は内部にCO選択酸化触媒を備え、第8筒体68の側面に8ヶ所設けられた孔55により改質ガスの取出し口28に連通している。

【0053】尚、孔33等の数は8に限るものではなく、また、孔33等の直径を孔35等からの距離に応じて変更して、第1混合室42内に圧力差がある場合でも均一な量が流入されるようにしてもよい。更に、孔ではなく、金網状のものでもよい。また、孔35等は、一つの孔ではなく、細かい複数の孔であっても、また混合を良くするため旋回流としたり、斜め方向に噴出させてもよい。

【0054】改質ガスの取出し口28は、例えば固体高分子型燃料電池（図示せず）の燃料ガス供給管に接続し、改質ガスの取出し口28から取り出された所定の濃度の水素を含有した改質ガス（燃料ガス）が固体高分子型燃料電池の燃料極側に供給され、それにより発電作用がなされる。尚、固体電解質型燃料電池の燃料極からのオフガスを、バーナ18での燃焼用ガスとして使用してもよい。

【0055】また、第2混合室46の上には、丸棒83によって内部が螺旋状に形成された冷却路57が設けてあり、上下に燃焼用空気の流入出口59が接続している。燃焼用空気は、上の流入出口59から入り、下から流出するようになっており、流入された燃焼用空気を加熱させるとともに第2PROX層13を冷却するようになっている。

【0056】次に、改質器2の動作について説明する。

(1) 始動時

まず、水の供給口20から改質用水を供給し、バーナ18を点火し、改質器2の内部を加熱する。バーナ18による加熱は、火炎からの輻射熱によって伝熱隔壁14を加熱し、また燃焼排ガスが伝熱隔壁14と第1筒体61の間を通過して燃焼排ガスの取出し口24から排気されることにより、原料ガスの改質触媒層8への導入部分と、改質触媒層8と、予熱層51と、水加熱路34とを内側より加熱する。

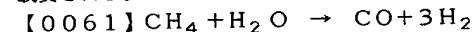
【0057】水は、所定温度に加熱されたら連結管25

を通り、原料ガスの供給口26より供給された原料ガスと混合され加熱路48を下降し、下部で折り返して上昇する。

【0058】このように、バーナ18の燃焼により、比較的短時間で改質器2の起動に必要な温度や水蒸気を得ることができる。また、バーナ18の燃焼排ガスを伝熱隔壁14と第1筒体61の間に通過させることにより、燃焼排ガス中に含まれる熱を吸収して排出でき、有効に利用して効率を向上することができる。

【0059】原料ガスは、都市ガス等の炭化水素系燃料であり、供給口26から供給されると、水蒸気とともに第5筒体65と第7筒体67の間の加熱路48を通り、予熱層51に送られる。その間に加熱路48では、加熱路48に接するシフト層10とPROX層12の温度が低いことから、水蒸気や原料ガスはシフト層10とPROX層12を加熱する。

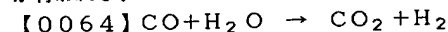
【0060】原料ガスが予熱層51に入ると、予熱層51内に充填されている充填物はバーナ18からの熱により加熱されていることから、原料ガスはその熱を吸収し、改質反応に必要な所定の温度以上に加熱されて改質触媒層8内に進入する。また、予熱層51は温度の低い原料ガスや水蒸気が順次供給されることから、この入口付近において温度を低く抑えられる。改質触媒層8に進入した原料ガスは、例えばメタンガスの場合次の反応で改質される。



改質触媒層8における改質反応は吸熱反応であることから、バーナ18の燃焼熱を吸収して反応が進行する。具体的には、バーナ18の燃焼排ガスが伝熱隔壁14と改質触媒層8の間の排気通路80を通過するときに、燃焼排ガスの熱が改質触媒層8に吸熱され、改質触媒層8では温度上昇を伴いながら改質反応が行なわれる。改質ガスは反応がほぼ平衡になると、改質触媒層8の下部から出て、下端で反転して通路50内に進入する。

【0062】通路50の内部には丸棒81が螺旋状に設けられており、改質ガスは螺旋状に上昇して改質触媒層8との間で、周方向の温度差がなく熱交換がされる。また通路50の上端は、比較的溫度が低い原料ガスや水蒸気が流入する予熱層51に接しており、これによりガスの温度がより低下され、CO変成反応に適した温度で上部から出て反転してシフト層10内に進入する。

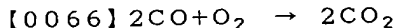
【0063】シフト層10では次のようなCO変成反応が行われる。



シフト層10でのCO変成反応は発熱反応であるので、改質ガスはシフト層10を通過するに従って温度が上昇する。一方、シフト層10の外側には加熱層48が設けられていることから、温度が上昇した改質ガスは冷却され、選択酸化反応に適切な温度になる。シフト層10の下部から出た改質ガスは、下端で反転し第1導入室43

に進入する。第1導入室43には、空気供給口32から供給された空気が導入され、改質ガスと空気が1つの孔35を通過して室44に流入することによって混合され、第1PROX層12のPROX触媒層によりCO選択反応が行なわれる。

【0065】第1PROX層12では、次のような反応が行われる。



第1PROX層12での反応が終了したなら、ガスは周囲に設けられた孔39から第2導入室58に流入し、また第2導入室58には空気供給口30から供給された空気が導入され、改質ガスと空気が孔39を通過する間にそのオリフィス効果によって混合され、第2PROX層13のPROX触媒層によって第2のCO選択反応が行なわれる。

【0067】CO選択酸化反応用の空気は、COをCO₂に変換するが、H₂も酸化してしまい、H₂を消費させてしまう。そこで、H₂の酸化を最小限とするため、第1混合室42を前段に設置し、改質ガスに必要な最小限の酸素を供給してCOの酸化反応を選択的に行なわせ、しかも第1PROX層12と第2PROX層13の複数段で反応を起こさせるようにした。

【0068】更に、シフト層10とPROX層12の間に、加熱路48が形成されていることから、始動時は水蒸気からの熱により反応に必要な温度を得るまでの時間が短縮される。

(2) 定常運転時

そして、各反応部分での温度が所定の温度に達し、定常状態に達すると、各調整弁（図示せず）を徐々に開放し、水と原料ガスを供給口20と供給口26から供給する。すると、水は水加熱路34で加熱されるとともに、更に加熱路48にてシフト層10とPROX層12の反応熱を吸収し蒸発する。これにより、発熱反応を行ない温度が上昇するシフト層10とPROX層12の温度が抑制され、水の気化熱によって所定温度に保持できる。

【0069】また改質用の水は加熱路48にてシフト層10とPROX層12の熱で加熱されて気体となるため、バーナ18の燃料を絞り、加熱して水蒸気を生成するための燃料を節約できる。原料ガスは、加熱路48にて加熱された水蒸気とともに予熱層51を介して改質触媒層8に進入する。

【0070】前述したようにバーナ18によりすでに予熱層51内は加熱されており、原料ガスと水蒸気は予熱層51で更に加熱されることから、改質触媒層8に必要な温度まで原料ガスの温度を上昇させるため予熱装置等を別途設ける必要がなく、熱効率を高めることができる。また、原料ガスを予め高温にして供給しないことから、予熱層51の入口付近の温度、例えば通路50の出口温度を低下させることができ、改質触媒層8の反応温

度より低い温度で反応を行なわせるシフト層10を通路50を介して改質触媒層8に連続して接続させることができる。

【0071】予熱層51で加熱された原料ガスは、改質触媒層8でさらに昇温して改質反応され改質触媒層8の下部より流出する。改質触媒層8の下部から流出した比較的高温の改質ガスは、通路50の内部を螺旋状に上昇し、改質触媒層8と均一な熱交換を行ない温度が低下する。つまり改質ガスは通路50内を周回しながら上昇するに従い熱が吸収され、温度が低下する。

【0072】したがって、改質触媒層8の前段に予熱層51を設け、この予熱層51の入口と通路50の出口を接近して構成したことにより、予熱層51に予熱なしの原料ガスが導入されて、予熱層51の温度、ひいては通路50の出口温度上昇が抑制されることとなり、はじめてシフト層10が連続して構成できる。

【0073】通路50でCO変成反応に適した温度まで降温した改質ガスは、上部からシフト層10に進入し、改質ガスに含まれるCOが二酸化炭素に変成される。この反応は発熱反応であるが、加熱路48との熱交換により、CO選択酸化反応に適した温度まで降温し、次のPROX層12に進入する。この段階での改質ガスには、COが0.5%程度含まれている。

【0074】また前述したように、通路50とシフト層10との間には断熱材53が充填されていることから、通路50の熱を遮断し、通路50での熱が直接伝わってシフト層10を加熱することはなく、シフト層10の温度を所定の温度に保持できる。

【0075】更に、シフト層10の外周に設けられた加熱路48により、湿り水蒸気を気化させることにより、いわばボイラ部を一体に組みこむこととなり、バーナ18による燃焼排ガスの熱損失を低減でき、かつシフト層10や第1PROX層12を気化熱により冷却し、シフト層10と第1PROX層12を所定の温度に抑制することができるため、シフト層10では、CO転化率が上昇でき、第1PROX層12では、好ましくない副反応であるメタネーション反応、および逆シフト反応を抑制することができる。またこのようにシフト層10と第1PROX層12での反応熱および顕熱を吸収できるので、熱効率を向上できる。

【0076】更に、シフト層10や第1PROX層12等を冷却する場合に、冷却流体としては、燃焼用空気、気体もしくは液体の改質用水、原料ガス等、あるいはこれらの複数の組み合わせを利用してもよい。例えば、加熱路48に燃焼用の空気を流通させる場合は、加熱路48を燃焼用空気専用の通路とし、あるいは加熱路48の通路を分割して燃焼用の空気を通し、改質用水、原料ガス等はこれら通路とは別途通路を設け、改質器2の内部に導入させるようにする。

【0077】一般に気体に比較して、液体の改質用水の

方が十分な冷却能力が得られ、温度を任意に低下させることができるという。またこれを原料ガスと組み合わせることで、冷却流体用の流入ノズルと原料ガスの流入ノズルが兼用でき、しかも冷却流体の流出用ノズルが不用にできることから、構成を簡略化できる。また、加熱路48内に送る水蒸気量を調整することにより、加熱路48内における冷却熱量を増減でき、反応上重要なシフト層10や第1PROX層12等の温度を所定値に保持することができる。

【0078】シフト層10から出た改質ガスには、第1、第2導入室43、58において空気の供給口32、30から空気が導入され、そして、第1混合室42および第2混合室46を通過することにより空気と混合されるので別途攪拌装置等を設置することなく十分に攪拌される。また、攪拌された状態でPROX触媒層に進入するので、PROX触媒層での反応において局部的な高酸素濃度の発生による不必要な水素のロスを防ぐことができる。また、孔35等の径を任意に設定することができるので、十分攪拌でき、過剰空気による水素のロスを抑制することができる。

【0079】2段目の第2PROX層13での反応が終了した改質ガスは、例えば水素75%、メタン5%、二酸化炭素19%、窒素1%、一酸化炭素10ppm以下を含むガスとして、改質ガスの取出口28から取出される。このように改質ガスは、一酸化炭素濃度が10ppm以下であるので、固体高分子型燃料電池に供給し、固体高分子型燃料電池の燃料ガスとして使用することができる。

【0080】したがって、シフト層10を通過した改質ガスは空気と混ざり、1つの孔35等を通過することから、通過する時に改質ガスと空気との混合が非常に良く行なわれる。このようにして空気との攪拌が十分に行なわれて、改質ガスが第1PROX層12等に導入されることから、選択酸化反応が効率良く行なわれ、選択酸化反応における水素の消費量を極力少なくして、CO濃度を所定値以下に低減させることができる。

【0081】尚、上記例では、第1PROX層12の下部にシフト層10（第2シフト層）を設置したが、第1PROX層12の下部にシフト層10を設置しなくともよい。また孔33等を周方向にほぼ均等に8ヶ所形成し、また孔35等を1ヶ所としたが、それらに限らず、複数箇所に適宜設けてよい。

【0082】更に、羽根9や丸棒81等は、改質器2の長手方向に連続している必要はなく、複数に適宜分割されている方が熱応力に対して対応できる。

【0083】次に、他の例について説明する。

【0084】図4に改質器3を示す。改質器3は、上述した改質器2と同様、バーナ18と、改質触媒層8と、改質触媒層8の外周にCO変成触媒層10を備え、CO変成触媒層10の外周には、加熱路48が形成されてい

る。加熱路48は、下向きの流路内に仕切部材としての丸棒82が螺旋状に挿入してあり、流路内を螺旋状に区画している。丸棒82は、連続した1本の丸棒が好ましいが、複数本でもよい。また、丸棒82による螺旋は少なくとも加熱路48内を一周している。図5に示すように、加熱路48の丸棒48の下端近傍に連通孔49が形成してあり、加熱路48の下向きの流路と上向きの流路とをこの1つの連通孔49が連通させている。

【0085】加熱路48の下端には、第1混合室72が設けられ、更に第1混合室72の下部には、空気の供給口32に接続した第1導入室74が周状に設けてある。

【0086】第1混合室72は、仕切板17、19、21等から形成されており、下段の仕切板17には複数の孔23が設けてあり、中央の仕切板19には通過孔として1つの孔27が、上段の仕切板21には下段の仕切板17と同様、複数の孔29が設けてある。更にこれら孔23、27、29は、特に孔27と改質ガス等の流通方向に対して同一直線状に並ばないように適宜ずらして配置してある。尚、孔27は1つに限らず、通過により改質ガスと空気とが充分混合されれば、通過抵抗等を考慮して複数あってもよい。

【0087】第1導入室74は、シフト層10と接続し、第1混合室72は、CO選択酸化触媒が充填された第1CO選択酸化触媒層12に接続している。第1CO選択酸化触媒層12は、選択酸化触媒を内部に備え、仕切板52、54、56等からなる第2混合室76を介して第2CO選択酸化触媒層13に接続している。仕切板52には複数の孔75が形成してあり、第2混合室76の第2導入室78に連通している。第2導入室78は、空気の供給口30が接続している。仕切板54には通過孔として1つの孔77が形成してあり、仕切板56には複数の孔79が形成してある。孔77は孔27と同様に、孔75や孔79と同一直線状に並ばないように配置してある。

【0088】第2CO選択酸化触媒層13は上部で改質ガスの取出口28に接続している。また、第2CO選択酸化触媒層13の外周には、空気用の流入出口59から燃焼用空気を流通させる冷却路57が周状に形成してある。

【0089】この改質器3によれば、水加熱路34で加熱された水（水蒸気）と供給口26から供給された原料ガスが、加熱路48の下向きの流路を下降する。その際、丸棒82により螺旋状に周回しながら下降し、周方向に均一に熱交換しながら水と原料ガスが加熱される。

【0090】加熱された水と原料ガスは、下端に達すると連通孔49を通過して上向きの流路に流入する。これにより、確実に螺旋状に流通して周方向に大きな温度差を生じさせず、かつ突然の沸騰等による脈動が発生しない。水と原料ガスは、加熱路48を上昇し、上述した改質器2と同様に改質触媒層8からCO変成触媒層10を

通過する。

【0091】CO変成触媒層10を通過した改質ガスには、第1導入室74において供給口32から導入された空気と混ぜられる。改質ガスと空気は、孔23を通過して第1混合室72の仕切板17と19の間に流入する。そして、仕切板19に形成された1ヶ所の孔27を通過することにより、確実に混合され、仕切板21の孔29で第1CO選択酸化触媒層12の全体に流入する。

【0092】第1CO選択酸化触媒層12を通過した改質ガスは、更に第2混合室76の仕切板52、54、56の各孔72、74、76を通り、第2CO選択酸化触媒層13に流入する。その際、仕切板17等の場合と同様に、1つの孔77を通過することにより空気の供給口30から導入された空気とよく混合され、第2CO選択酸化触媒層13に流入する。第2CO選択酸化触媒層13を通過した改質ガスは所定のガス濃度となっており、改質ガスの取出し口28から取り出される。

【0093】また、第2CO選択酸化触媒層13の外周に形成された冷却路57に、改質器2の場合と同様に上部の流入出口59から燃焼用空気（あるいはガス）等を流入し、下部の流入出口59から流出させる。これにより燃焼効率が向上し、また第2CO選択酸化触媒層13の温度を適切に保持できる。

【0094】更に改質器は、図6に示すようにCO選択酸化触媒層12を一段で構成してもよい。図6に示す改質器4は、加熱路48の外周にCO選択酸化触媒層12を一段で形成してあり、CO選択酸化触媒層12の内側の加熱路48等の構成は前述した構成とほぼ同一である。

【0095】このように改質器を構成しても、CO濃度が必要とされる要求等を満たしていればよい。

【0096】

【発明の効果】本発明によれば、次のような極めて優れた効果が得られる。

【0097】改質触媒層の前段に充填物を有する予熱層を設けたことにより、原料予熱器を不要とし、効率よく攪拌でき、かつ消費熱量を低減できる。

【0098】予熱層の入口と通路の出口を接近させたことから、通路出口の温度を低下でき、改質触媒層とCO変成触媒層とを直結に構成できる。

【0099】予熱層や改質触媒層、その他各通路等の内部を羽根等により螺旋状に形成したため、均一な温度分布と熱回収効率が向上でき、出口温度を所望の温度にできる。

【0100】CO変成触媒層とCO選択酸化触媒層との間に加熱路を形成したことから、CO選択酸化触媒層まで一体化が可能となった。又、CO変成触媒層とCO選択酸化触媒層の反応熱を回収できるため、効率を向上できる。又好ましくない副反応を抑制できる。

【0101】通路の壁面とCO変成触媒層の壁面とを別

体で形成し、その間に空隙を設けたことにより、双方間の断熱性が向上し、通路での回収効率が向上し、CO変成触媒層の温度上昇を抑制でき、かつ両者間に働く熱応力を回避できる。

【0102】混合室により、ガスと空気とを均等に混合でき、水素ロスを低減できる。

【0103】CO変成触媒層とCO選択酸化触媒層との間に設けた加熱路にて、改質用水を気化させることができるので、燃料を用いることなくボイラを構成できる。またCO変成触媒層とCO選択酸化触媒層に対する充分な冷却能力を得ることができる。

【0104】改質ガスの一酸化炭素の濃度を所定値以下に低減できることから、固体高分子型燃料電池の水素発生装置として使用し、小型、高効率の燃料電池を構成することができる。

【0105】CO変成触媒層とCO選択酸化触媒層からなる流路を、対向する通路に対して短縮したので、CO変成触媒層の過度の温度上昇を防止でき、適切な温度に保持して反応を阻害させることがない。

【0106】断熱材を充填したことにより、改質器内部からの熱放出を防止し、熱効率を高めることができ、かつ、各部を適宜に熱遮断し、適切な温度に保持することができる。

【0107】通路の下流側にCO変成触媒層を設けたことにより、かかるCO変成触媒層の温度をすばやく上昇させることができ、運転開始時に直ちにCO変成触媒層の反応を可能とし、改質器の起動を早めることができる。

【0108】CO変成触媒層を通過した改質ガスと空気とを十分に攪拌することができるので、CO選択酸化触媒層における反応を確実、かつ無駄なく行なわせることができ、改質器の水素発生効率を上昇させることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明にかかる単管円筒式改質器の概略構成を示す縦断面図である。

【図2】本発明にかかる単管円筒式改質器の一部横断面図である。

【図3】本発明にかかる単管円筒式改質器の一部側面図である。

【図4】本発明にかかる単管円筒式改質器の他の例を示す縦断面図である。

【図5】本発明にかかる単管円筒式改質器の一部側面図である。

【図6】本発明にかかる単管円筒式改質器の他の例を示す縦断面図である。

【符号の説明】

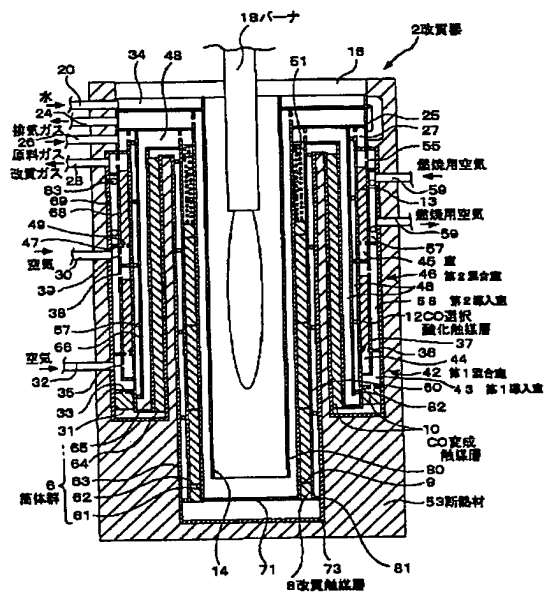
2、3、4 改質器

6 筒体群

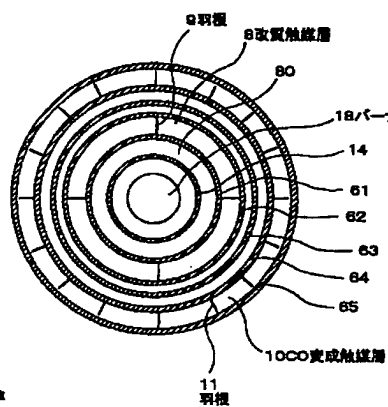
8 改質触媒層

- 9、11 羽根
 10 CO変成触媒層（シフト層）
 12 第1CO選択酸化触媒層（PROX層）
 13 第2CO選択酸化触媒層（PROX層）
 14 伝熱隔壁（輻射熱）
 16 バーナ取付台
 17、19、21、47、52、54、56 仕切板
 18 バーナ
 20 水供給口
 23、27、29 孔
 24 燃焼排ガスの取出口
 25 連結管
 26 原料ガスの供給口
 28 改質ガスの取出口
 30、32 PROX用空気の供給口
 31、36 仕切板
 33、35、38、39、49、55 孔
 34 水加熱路
 42 第1混合室
 43 第1導入室
 44、45 室
 46 第2混合室
 48 加熱路
 50 通路
 51 予熱層
 53 断熱材
 57 冷却路
 58 第2導入室
 59 流入出口
 61～69 第1～第9筒体
 71、73 底板
 72 第1混合室
 74 第1導入室
 75、77、79 孔
 76 第2混合室
 78 第2導入室
 80 排気通路
 81、82、83 丸棒

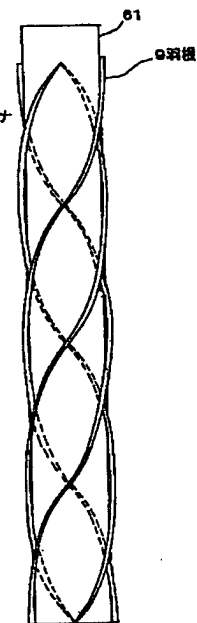
【図1】



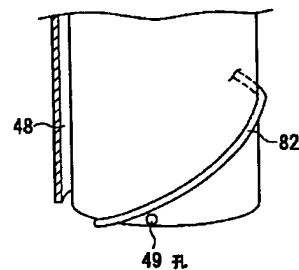
【図2】



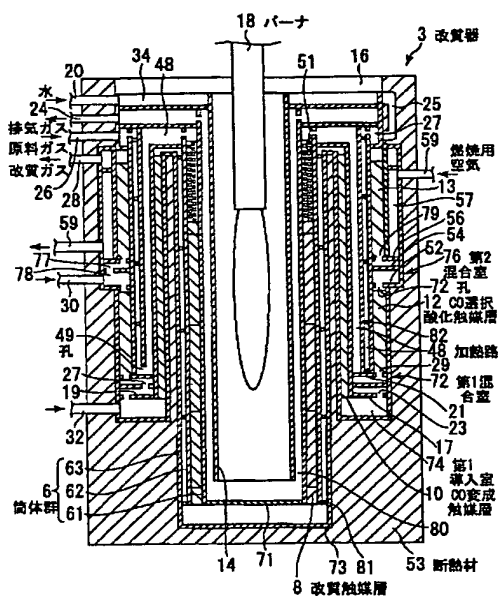
【図3】



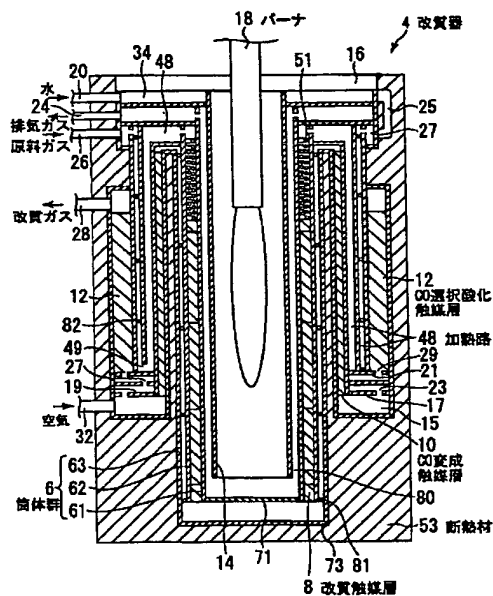
【図5】



【図4】



【図6】



フロントページの続き

(51) Int. Cl.⁷
H 01 M 8/06

識別記号

F I
H 01 M 8/06

ターコード (参考)

B
G

// H 01 M 8/10

8/10

Fターム(参考) 4G040 EA03 EA06 EB12 EB24 EB31
EB32 EB45 EB46 EC08
4H060 AA02 BB11 BB12 CC18 DD01
5H026 AA06
5H027 AA06 BA01 BA10 BA16 BA17